

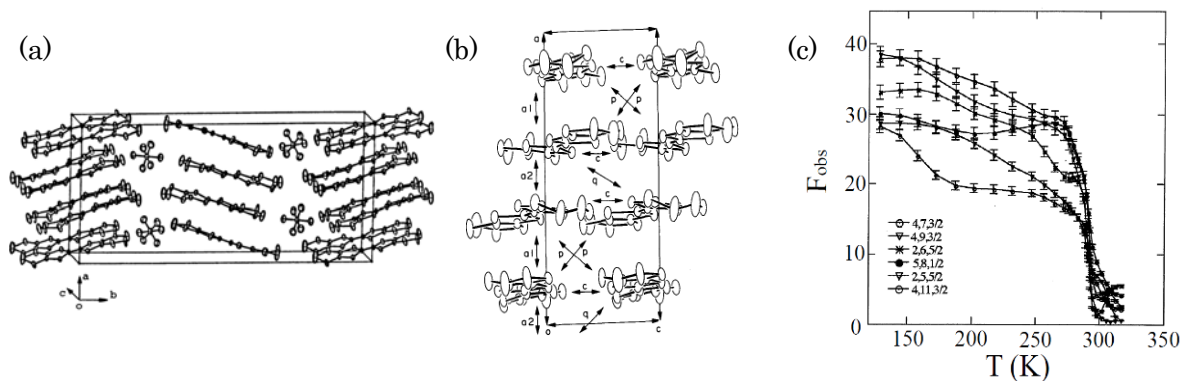
電荷秩序系有機導体の電場応答

(東大物性研¹, 神戸大院理², 総合科学研究機構³, KEK物構研PF/CMRC⁴)○市川敦¹, 高橋一志², 中尾朗子³, 熊井玲児⁴, 中尾裕則⁴, 小林賢介⁴, 村上洋一⁴, 森初果¹

【序】

近年、分子性導体の分野では、強相関電子系における「電荷秩序」という物理現象が注目されている。電荷秩序は長距離クーロン相互作用、すなわち分子間のクーロン斥力を起源とし、温度低下に伴って短距離から長距離へと秩序の成長と、物質によっては電子 - 格子相互作用に由来する格子変形を生じる現象である。この電荷秩序物質における電場、磁場、光等の外場応答が、理論と実験の双方から議論されており、特に電場応答の研究では、有機結晶への電圧印加により 3桁程度の電気抵抗の減少を示す巨大非線形伝導や、電場誘起準安定状態、有機サイリスタ効果[1]など、基礎だけでなく分子エレクトロニクスへの応用に繋がる興味深い現象が報告されている。

本研究は電場印加による新しい電子状態の創出とその機構解明を目指している。今回は室温付近 $T_{CO} = 297$ K で電荷秩序転移をする有機導体 β -(BEDT-TTF)₂PF₆[2]を用いた。この結晶は Fig.1(a),(b)に示すようにBEDT-TTF分子が積層した構造をとっており、 $T_{CO} = 297$ Kでの長距離電荷秩序形成に伴い c^* 方向に 2倍周期の超格子を形成する。(Fig.1(c)) [3, 4] そこで、この電荷秩序状態での電場応答を調べたところ、巨大非線形伝導および電荷秩序の融解と見られる超格子強度の減少を観測したので報告する。

Fig.1 (a) β -(BEDT-TTF)₂PF₆の結晶構造[2] (b) ドナー分子配列[3] (c) 超格子の温度依存性[4]

【実験】

有機導体 β -(BEDT-TTF)₂PF₆の単結晶を 205 Kまで冷却し、電圧制御、電流制御二端子法で、それぞれ幅 5 msecの電圧、電流パルスを印加して、電荷秩序状態での結晶の V - I 特性を観測した。また、これと同時にサンプルの両端にオシロスコープを接続することで、サンプル電圧の時間依存性を観測した。そして、この実験により得られた巨大非線形伝導の起源を調べるために、結晶を窒素吹き付けにより 235 Kに冷却し、放射光(12.4 keV)を用いて電荷秩序状態での電場印加無および電流パルス幅、パルス間隔共に 50 msecの電場印加時の X線回折写真を露光時間 5 minの連

連続光で撮影して、その超格子強度の変化を調べた。

【結果と考察】

電荷秩序転移温度 $T_{co} = 297$ K 以下 270 K – 218 K の電荷秩序状態において、電圧制御二端子法で I - V 特性を測定したところ、Fig.2(a) のように 226 K 以下では 2 桁以上となる大きな抵抗率の減少を観測した。また、電流制御二端子法で測定し、時間依存性をオシロスコープで観測したところ、Fig.2(b) のように 235 K で 3 msec までは緩やかな、その後急激な電圧降下が見られた。そして、この 5 msec 時のサンプル電場の電流密度依存性は Fig.2(c) のようになる。 T_{co} 直下 285 K では緩やかな非線形 V - I 特性を、275 K 以下では負性抵抗と電圧降下（スイッチング現象）を観測した。

このスイッチング現象前後の結晶内の電子状態の変化を調べるために、放射光を用いて電場印加無と印加時での X 線回折写真を撮影した。その結果、8 個の超格子回折点について電場印加のない場合と比較して、平均で電場印加時の超格子反射強度が 26% 減少した。露光時間における低抵抗状態の占める時間の割合から見積もると、電場誘起低抵抗状態では 68% の超格子強度の減少と計算される。このことから、フィラメントというよりはバルクで電荷秩序の融解が起きたために、高抵抗状態から低抵抗状態に遷移したと推測できる。

今回は連続光で観測したが、今後は Fig.2(b) の 3 – 5 msec で見られるような低抵抗状態でのみ X 線を照射できるようにチョッパーを用いて印加電流と同期した X 線を照射し、低抵抗状態での結晶の電子状態を明らかにする。また、電場下でのラマン散乱分光測定により、電荷秩序が融解した状態での電荷分布の変化と、融解の均質性の程度を調べる予定である。

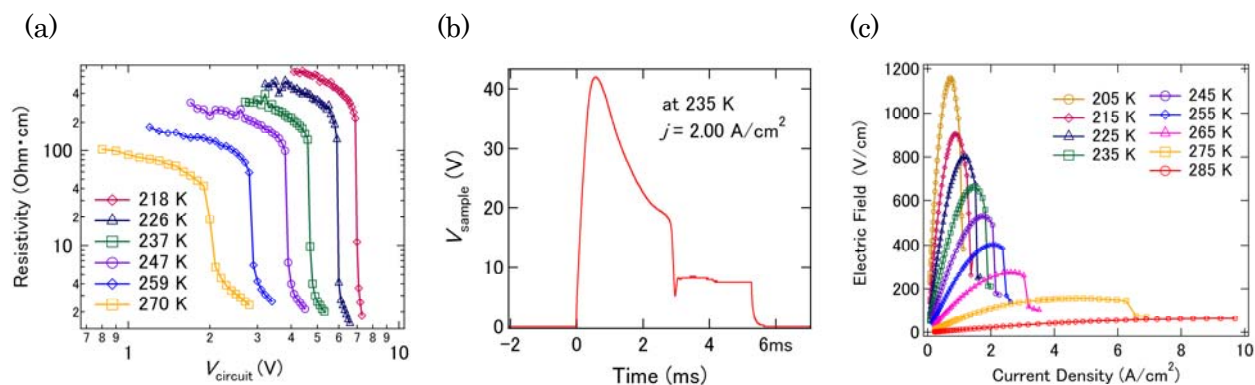


Fig.2 (a) サンプル抵抗率の回路電圧依存性 (b) サンプル電圧の時間依存性
(c) 電場の電流密度依存性

【参考文献】

- [1] F. Sawano *et al.*, *Nature* 437, 552 (2005).
- [2] H. Kobayashi *et al.*, *Chem. Lett.* 581 (1983).
- [3] T. Mori *et al.*, *Solid State Comm.* 53, 627 (1985).
- [4] G.K. Rohan Senadeera *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* 67, 4193 (1998).